УДК 621.039.542.34

О МОДЕЛИРОВАНИИ НЕКОТОРЫХ ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ДИСПЕРСИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ

И.И. Локтев, К.Ю. Вергазов, В.А. Власов*, И.А. Тихомиров*

ОАО «НЗХК». г. Новосибирск
E-mail: loktev@nccp.ru
*Томский политехнический университет
E-mail: vlasov@tpu.ru

Рассматриваются модели технологического поведения порошковых материалов, связанных с вопросами их упаковки, смешения, влияния на однородность и прочность топливных таблеток.

Введение

Дисперсионные вещества часто проявляют свойства, характерные для разнородных материалов – твёрдых и жидких, сплошных и дискретных, аморфных и кристаллических, упругих и пластичных. В процессе технологической переработки происходит переход от одного доминирующего набора свойств к другому. Поэтому при разработке технологических схем изготовления промышленных изделий с использованием дисперсионных материалов, например, для производства топливных таблеток для энергетических реакторов, необходимо широко использовать различные приёмы моделирования. Более того, могут быть сформулированы общие приёмы моделирования технологического процесса, о них пойдёт речь в данной статье.

Авторами ранее уже затрагивались некоторые проблемы анализа и диагностики состояния дисперсных систем, а также моделирования технологических операций, при обработке порошковых материалов в том числе [1–5].

1. Общие вопросы моделирования технологического процесса

Технологический процесс промышленного изготовления каких-либо изделий характеризуется набором различного рода процессов, протекающих с продуктом, и их последовательностью. В общем виде можно дать следующую его характеристику [4]:

"Технологический процесс – это совокупность организованных с помощью определённых технических средств, взаимно согласованных потоков материальных, энергетических и информационных ресурсов, предназначенных для последовательного и направленного изменения свойств исходного продукта для получения конечного изделия с заданными потребительскими свойствами с приемлемо низкими издержками производства и минимальным риском для здоровья персонала и населения, для загрязнения окружающей среды".

Графически отдельную операцию и весь процесс изготовления продукции можно изобразить следующей схемой в виде чёрного ящика:

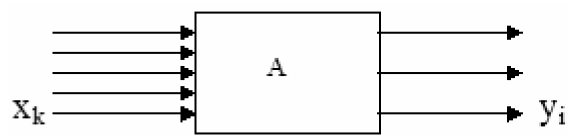


Рис. 1. *Представление технологического процесса в виде чёрного ящика, где X и Y – множество существенных параметров начального состояния (характеристики качества) исходного материала и состояния готового продукта, A – оператор технологического воздействия, зависит от параметров, определяющих технологические режимы обработки изделий*

Для каждого параметра качества готового изделия можно записать функциональное выражение в общем виде:

$$y_i = F_i(x_1, x_2, ..., x_n, a_1, a_2, ..., a_k). \qquad (1)$$

Вид функции F будет определять математическую модель исследуемого процесса.

Математическая модель технологической операции, состоящей из набора определённых действий над продуктом, это такое символическое выражение или система выражений, которая заменяет действия над продуктом определёнными мате-

матическими действиями над параметрами, характеризующими состояние продукта, и параметрами процесса (технологическими режимами) [6, 7].

В общем виде функциональную зависимость можно представить системой линейных уравнений (2), которую можно записать в обобщённом виде (3):

$$\begin{cases} y_1 = a_{11}x_1 + a_{12}x_1 + \ldots + a_{1n}x_1 \\ y_2 = a_{21}x_2 + a_{22}x_2 + \ldots + a_{2n}x_2 \\ \ldots\ldots\ldots\ldots\ldots\ldots\ldots\ldots \\ y_m = a_{m1}x_n + a_{m2}x_n + \ldots + a_{mn}x_n \end{cases} . \quad (2)$$

$$y_i = \sum_{j=1}^{n} a_i x_j. \quad (3)$$

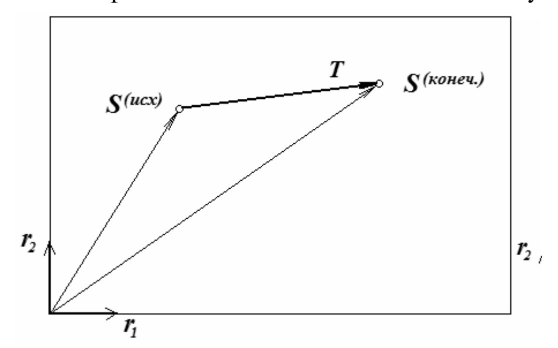
Используя принцип фазового пространства, можно переход обрабатываемого продукта из одного (начального) состояния в другое (конечное) состояние изобразить в виде вектора T, или ломаной линии L в фазовом пространстве, рис. 2:

$$S^{(конеч)} = S^{(исх)} + T. \quad (4)$$

Длина вектора T ломаной линии L определяет степень технологического преобразования продукта за одну операцию или в результате выполнения всего технологического процесса. Для какой-либо произвольной операции p, она равна:

$$|T_p| = \sqrt{\sum_{i=1}^{n} (y_{pi} - x_{pi})^2}. \quad (5)$$

Изменение какого-либо одного параметра изделия по мере совершения последовательных операций (во времени) может быть представлено как проекция мировой линии на ось этого параметра. На рис. 3 приведена серия виртуальных линий изменения диаметра топливной таблетки при её спекании и шлифовании, которая помогает в каждом конкретном случае выбирать оптимальный технологический путь.



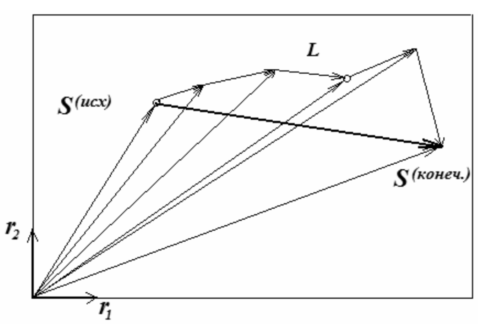


Рис. 2. *Изменение состояния продукта по мере его переработки, изображённое в фазовом пространстве*

Таблица 1. *Структурная база уровней для построения модели изготовления таблеток ядерного топлива*

Уровень	Структурные элементы уровня	Размер структурных элементов уровня
1. Атомарный	**Изотопный состав** топливных, конверсионных и выгорающих элементов Химические элементы основного вещества добавок и примесей	Размер атома
2. Молекулярный	**Состав веществ** (химическое соединение), основное вещество, добавки и примеси	Размер молекулы
3. Кристалл	Фазовый состав, вид и параметры кристаллической решётки	На несколько порядков больше межатомных расстояний
4. Частица, зерно	Наименьшая составная часть порошка, отвечающая его составу Элементы микроструктуры твёрдого материала (**зерно, поры**, включения)	Десятые доли мкм – сотни мкм
5. Часть изделия	**Агломераты** порошка Элементы макроструктуры твёрдого материала (**группа** зёрен, **скопления** пор, несплошности)	Сотни мкм – мм
6. Изделие, составная часть другого изделия	Навеска, проба порошка Таблетка	Граммы – сотни грамм
7. Тарное место. Столб таблеток	Часть материала промышленного объёма (тарное место, **контейнер**) Порция изделий, предназначенная для использования в составе другого изделия (**столб таблеток**)	Кг – десятки кг
8. Партия порошка, таблеток	Весь объём материала, выпущенного в одних условиях Партия, поставка, комплект изделий, в составе которых использован данный материал	Сотни кг – тонны
9. Топливная часть комплекта ТВС (перегрузка, активная зона)	Весь объём материала, выпущенного в одних условиях Партия, поставка, комплект изделий, в составе которых использован данный материал	Сотни кг – тонны

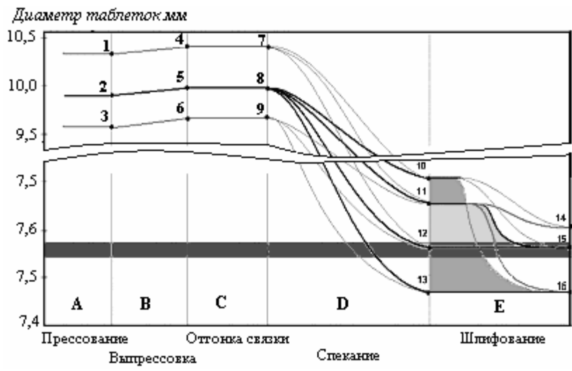


Рис. 3. Изменение диаметра таблетки при изготовлении

Для обрабатываемого материала или изделия могут быть определены структурные уровни строения, которые образуют некоторую структурную базу. Например, для порошка двуокиси урана и таблетки можно выделить уровни, представленные в табл. 1 [4].

Каждая технологическая операция в той или иной степени изменяет свойства материала, но, обычно это происходит только на одном или нескольких структурных уровнях. Эти уровни можно назвать характеристическими. В графическом виде технологические операции и состояние обрабатываемого материала после каждой операции в рамках характеристических уровней можно представить в виде схемы на рис. 4. Схема является основой структурно-операционной модели технологического процесса [4].

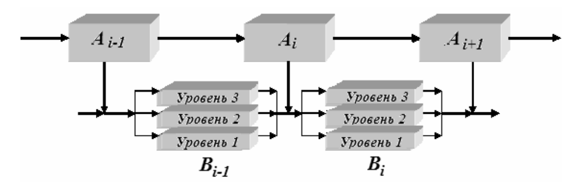


Рис. 4. Структурно-операционная схема технологического процесса

2. Частные модели

2.1. Модель упаковки полидисперсных материалов

Доля объёма, который занимают частицы порошка в слое засыпки, называют степенью упаковки. Самый простой пример – упаковка монодисперсных материалов, степень упаковки – 0,635. Упаковку можно повысить, разместив в пространстве между частицами, монодисперсный порошок с размером частиц в 6,7 раз меньше, рис. 5. В табл. 2 приведён состав четырёх монофракций, дополняющих друг друга по упаковке.

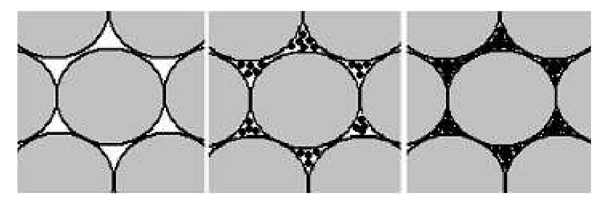


Рис. 5. Стадии повышения упаковки порошка путём заполнения промежутков между частицами более мелкой монофракцией порошка

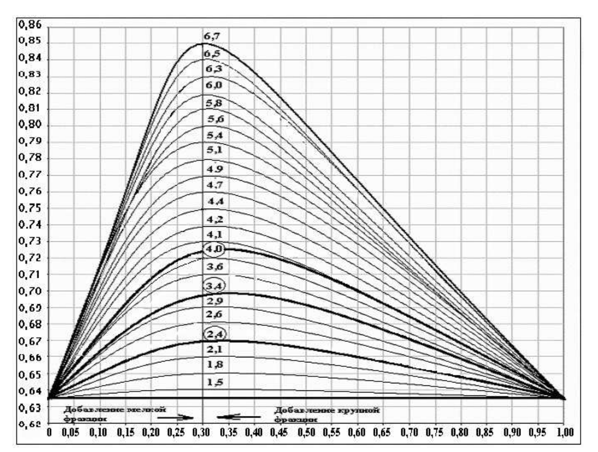


Рис. 6. Диаграмма упаковки двух монофракций с произвольным отношением диаметров (слева) и реальный фракционный состав порошка двуокиси урана ADU (справа)

Для того, чтобы определять упаковку двух монофракций с произвольным отношением диаметров, можно использовать диаграмму на рис. 6, которая составлена экспериментальным способом с использованием метода интерполяции. На диаграмме по горизонтали отложена доля второй фракции, по вертикали – степень упаковки смеси для данного отношения диаметров фракций.

С использованием рассмотренных соотношений можно составить модель упаковки полифракционных порошков. Для этого определяют реальный фракционный состав порошка, который разбивается на подфракции с разбегом размера частиц в каждой не более чем в два раза. Вычисляют средневзвешенный диаметр каждой подфракции. Затем, по диаграмме на рис. 6 определяется упаковка двух первых полидисперсных подфракций как монофракций, которые образуют, так называемый ансамбль. Затем процедура повторяется с использованием полученного ансамбля частиц и следующей полифракции. Таким образом, присоединяя к ансамблю частиц всё новую, более мелкую, фракцию, определим упаковку всего порошка.

Таблица 2. *Параметры четырёх взаимно дополнительных монофракций порошка*

Число фракций, n	Диаметр частиц D_n, мкм	Коэффициент упаковки смеси, δ_n	Коэффициент упаковки по долям фракций	Состав смеси по фракциям, %
1	D_1 (500)	0,635	0,635	100
2	D_2=0,15D_1 (75)	0,867	0,635+0,232	73,3+26,7
3	D_3=0,023D_1 (11,5)	0,951	0,635+0,232+0,084	66,8+24,4+8,8
4	D_4=0,0034D_1 (1,7)	0,983	0,635+0,232+0,084+0,032	64,6+23,6+8,5+3,3

Сказанное можно выразить ур. (6), где $f_1(\alpha, \beta)$ – функционал, определяемый по диаграмме на рис. 6 по соотношениям долей фракций α и их средним размером частиц β.

$$\delta_{1-n} = \sum_{i=1}^{n} f_i\ (\alpha_{12...i}, \beta_{12...i}) - 0{,}635(i-1). \qquad (6)$$

2.2. Модель произвольного окисления двуокиси урана в слое порошка

При получении порошка двуокиси урана наблюдают его самопроизвольное окисление на воздухе. Окисление порошка в слое (в контейнере) тоже имеет место. На это указывают дефекты внешнего вида таблеток, которые изготавливают из порошков, качество которых тщательно проконтролировано. Это подтверждает и модель процесса окисления, составленная в виде последовательного рассмотрения состояния системы «порошок – воздух» в слое порошка и в контейнере, рис. 7:

1. Концентрация кислорода в газовой фазе равновесная, температура двуокиси урана равна окружающей.
2. Происходит сорбция кислорода поверхностью двуокиси, выделяется тепло, порошок начинает постепенно нагреваться, концентрация кислорода в газовой фазе в слое порошка снижается, особенно у дна контейнера, максимальная температура слоя вблизи поверхности, где снижение концентрации кислорода мало, и невелики потери тепла.
3. В слое, где температура порошка максимальна, за счёт самоускорения реакции окисления под действием выделяющегося тепла, происходит всплеск температуры, в ограниченном слое порошка двуокись окисляется с образованием фаз высших окислов.
4. За счёт ускоренного поглощения кислорода в зоне «горения» порошка, концентрация его падает, а восполнение происходит в основном за счёт диффузии с поверхности, скорость которого ниже скорости реакции окисления, поэтому скорость окисления и интенсивность тепловыделения снижается, реакция гаснет.

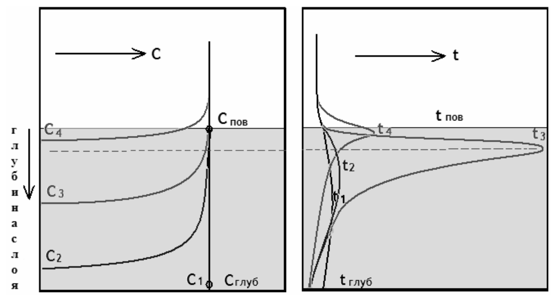


Рис. 7. *Изменение концентрации кислорода в контейнере с порошком (слева) и температуры порошка (справа)*

Доля подокисленного порошка обычно бывает настолько незначительной, что после перемешивания слоя увеличение кислородного коэффициента в пробе может не превышать около 0,02 ед.

Окисленные агломераты двуокиси урана вызывают в спечённых таблетках контурную несплошность, которая считается недопустимым дефектом внешнего вида. Расчёты показывают, что достаточно иметь доли процента таких частиц в порошке, чтобы каждая таблетка ВВЭР имела на своей поверхности недопустимый дефект.

2.3. Модель смешения порошков

При подготовке шихты для прессования заготовок в порошковой металлургии часто приходится смешивать порошки в различных смесителях, имеющих разную эффективность смешения. При этом, для получения качественной керамики необходимо обеспечивать высокую однородность порошков.

Для того, чтобы определить, на каком оборудовании при каких режимах смешения следует готовить смеси до заданной степени однородности, можно использовать следующую модель смешения.

Введём показатель интенсивности смешивания порошка на конкретном смесителе – ζ. Будем считать, что за каждый такт смешения в каждую единицу объёма смесителя перейдёт количество ζA одного из двух смешиваемых веществ A и B. Тогда за n тактов смешения концентрация его в смесителе будет равна:

$$C_{\zeta A}^{(n)} = \zeta C_A^{(0)} (1-\zeta)^{n-1}; \quad C_{\zeta B}^{(n)} = 1 - C_{\zeta A}^{(n)}, \qquad (8)$$

где $C_{\zeta A}^{(0)}$ – начальная среднеобъёмная концентрация порошка A в смесителе. При $n \to \infty$ $C_{\zeta A}^{(n)} \to C_{\zeta A}^{(0)}$.

Модель хорошо работает в числовом виде при использовании программы Excel. На рис. 8 и 9 приведены примеры для смешения двух материалов в различных условиях.

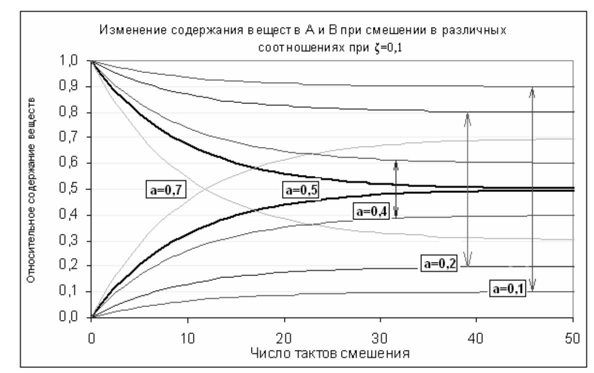


Рис. 8. *График изменения содержания веществ при их различных соотношениях, степень смешения ζ=0,1*

Определив экспериментально для данного смесителя значение ζ, можно прогнозировать степень смешения во времени.

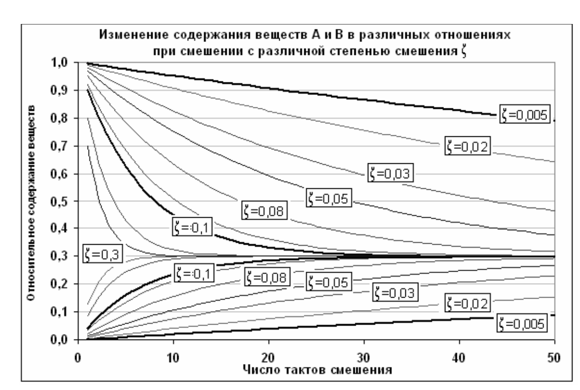


Рис. 9. *График изменения содержания веществ при различной интенсивности смешения, отношение веществ 3/7*

2.4. Экспериментальная модель скалываемости спечённых таблеток

Скалываемость керамических изделий, как один из показателей прочности, играет огромную роль в достижении высокого выхода в годное при промышленном производстве ядерного топлива. Базируясь только на экспериментальных данных можно выявить некоторые закономерности, которые позволяют повысить эффективность производства. На рис. 10 приведено семейство кривых, полученное при испытании на скалываемость таблеток ВВЭР-1000 разной плотности. Таблетки сбрасывали с высоты 100 мм на стальную плиту от 5 до 100 раз в отдельных циклах испытаний и определяли суммарную убыль веса.

Экстраполируя кривые, можно выявить следующие закономерности их хода:

- зависимости имеют параболический вид;
- семейство сходится в одну точку при приближении к теоретической плотности таблеток;
- вершина параболы (минимальная скалываемость) при малых значениях числа падений находится в области плотности 10,4 г/см^3, при увеличении числа падений – смещается к точке теоретической плотности.

Плотность двуокиси урана 10,4 г/см^3 является особой точкой. При увеличении плотности именно при 10,4 г/см^3 преимущественно открытая пористость переходит в преимущественно закрытую. На графике эта точка соответствует минимуму скалываемости.

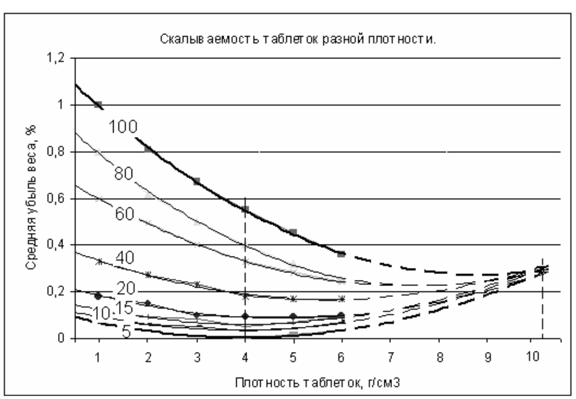


Рис. 10. *Скалываемость спечённых таблеток при их сбрасывании на стальную плиту в зависимости от плотности и числа сбрасываний*

По мере снижения пористости растёт хрупкость таблеток, по мере роста открытой пористости снижается прочность таблеток. Этим можно объяснить полученные результаты.

Выводы

1. Моделирование технологических процессов является одним из основных способов выявления свойств материалов, закономерностей их поведения в процессе технологической переработки.
2. Вид модели, степень соответствия модели изучаемому процессу определяется характеристическим структурным уровнем изучаемого объекта, зависит от имеющихся теоретических, экспериментальных закономерностей и литературных данных, описывающих процесс на данном уровне.
3. Рассмотрены частные модели: упаковки полидисперсных материалов, произвольного окисления порошка двуокиси урана, смешения порошков в смесителе, скалываемости спечённых таблеток, которые могут служить примером исследования технологических свойств материалов в области порошковой металлургии методом моделирования.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Власов В.А., Тихомиров И.А., Мышкин В.Ф. Диагностика низкотемпературной плазмы высокочастотных разрядов и плазмы горения веществ. – М.: Энергоатомиздат, 2002. – 300 с.
2. Власов В.А., Тихомиров И.А., Сосновский С.А. Термодинамическое моделирование плазмохимических процессов переработки фторидов металлов // Известия Томского политехнического университета. – 2003. – Т. 306. – № 2. – С. 42–44.
3. Власов В.А., Тихомиров И.А., Мышкин В.Ф. Определение дисперсности конденсированной фазы гетерогенной плазмы // Известия Томского политехнического университета. – 2003. – Т. 306. – № 6. – С. 42–45.
4. Локтев И.И. Структурно-операционная модель описания технологического процесса // Вакуумная наука и техника: Матер. X научно-техн. конф., г. Судак, сентябрь, 2003. – Т. 1.
5. Локтев И.И., Александров А.Б., Вергазов К.Ю., Гузеев В.В. Подготовка порошков диоксида урана к сухому прессованию топливных таблеток // Известия Томского политехнического университета. – 2004. – Т. 307. – № 6. – С. 84–89.
6. Зарубин В.С. Математическое моделирование в технике. – М.: Изд-во МГТУ им. Н.И. Баумана, 2001.
7. Шаповалов Л.А. Моделирование в задачах механики элементов конструкций. – М.: Машиностроение, 1990.